

300 MHz及び600 MHz DNP-NMR分光の光源 Gyrotron FU CW VIIの発振特性 Operation characteristic of Gyrotron FU CW VII for 300 MHz and 600 MHz DNP-NMR spectroscopy

小菅幸介, 出原敏孝, 小川 勇, 斉藤輝雄, La Agusu,
印牧知廣, 高橋大樹, Mark E. Smith, Ray Dupree
K.Kosuga, T.Idehara, I.Ogawa, T.Saito, La Agusu,
T.Kanemaki, H.Takahashi^A, Mark E.Smith^A and R.Dupree^A

福井大学 遠赤外領域開発研究センター
Research Center for Development of Far-Infrared Region, University of Fukui
Fukui 910-8507, Japan
ウォーウィック大学NMRグループ^A
NMR Group, University of Warwick
NMR Group, University of Warwick^A, Coventry CV4 7AL UK

Abstract

The Nuclear Magnetic Resonance (NMR) spectroscopy is a useful tool for the analysis of protein. However, in order to complete the measurement of complicated protein molecules it takes much time because of low sensitivity of NMR. Now a day, Dynamic Nuclear Polarization (DNP) is used as a key technology to enhance the sensitivity.

To achieve the DNP enhanced NMR spectroscopy, a high power radiation in sub-THz region is required. There are some radiation sources in this region, but most of radiation sources are not powerful. Gyrotron is only one radiation source which is available for DNP.

We have developed the Gyrotron FU CW VII for 300 MHz and 600 MHz DNP-NMR spectroscopy. The radius and the length of the cavity are 2.175 mm and 19 mm, respectively. Designed cavity mode is TE_{4,2} mode with the frequency $f = 203.75$ GHz at the fundamental cyclotron resonance and TE_{1,6} mode with $f = 395.28$ GHz at the second harmonic resonance. A 9.2 T Superconducting magnet is used for this gyrotron. The construction was finished and the operation test was completed successfully.

1.はじめに

核磁気共鳴（NMR）分光測定は蛋白質の構造解析に有力な手法である。しかし、測定感度が低いために、解析に十分な情報量を得るには膨大な時間がかかる。この問題を解決できる有力な手法として動的核偏極がある。これにより、NMRの感度を大幅に増大することができ、短時間で十分な情報を得ることができる[1][2]。

動的核偏極—核磁気共鳴（DNP-NMR）分光測定の実現には、NMR周波数に対応するESR周波数で出力10~50Wの高出力sub-THz波が必要である。ジャイロトロンは比較的コンパクトであるにも関わらず、このような条件を満たす高出力電磁波の得られる有力な光源ある[3][4]。

Warwick大学NMRグループとの共同研究として300 MHz及び600 MHz DNP-NMR測定を計画した。この研究のためには、周波数198.6 GHz, 396.6 GHzで出力数W以上の電磁波が要求される。そこで、われわれは、一つのジャイロトロンで二つの周波数近傍で高出力が得られる光源の開発を行った。

このジャイロトロンの共振器は半径2.175mm, 長さ19 mmとすることで、基本波発振により $TE_{4,2}$ モードで周波数203.45 GHz及び $TE_{1,3}$ モードで周波数187.7 GHz, 二次高調波発振により、周波数396.7 GHz の発振が得られる。300 MHz DNP-NMR分光測定に必要な周波数帯から $TE_{4,2}$ モード及び $TE_{1,3}$ モードの周波数はずれているが、NMR分光装置の磁場強度を変えることで測定が可能である。

以下に、実際に開発を行ったジャイロトロン FU CW VIIの動作特性について記す。

2.ジャイロトロンFU CW VII

ジャイロトロンFU CW VIIの写真を図2-1に示す。このジャイロトロンは主磁場として9.2T超伝導マグネット、電子の入射位置を変化させるための補助磁場コイル3枚、マグネトロン入射型電子銃、デマウントブルのジャイロトロン管及び真空窓（サファイア）からなっている。共振器の形状は半径2.175 mm, 長さ19 mmの空洞円筒型でジャイロトロン管に挿入されており、共振器中心と主磁場中心が同じ高さにあるようセットされている。福井大学で行ったときに用いた高圧電源は、パルス電子（株）のPG-30K500SUを用いており、半導体スイッチ(パルス電子（株）HUS-36K20-SS)によりカソード電圧のスイッチングによりパルス動作可能である。



図2-1 Gyrotron FU CW VII

次に図2-2に主磁場のZ軸方向に対する磁場強度分布を示す。このマグネットは一般的にジャイロトロンに用いられるマグネットよりも中心($Z = 0$)付近で強度が一様な区間が長い。

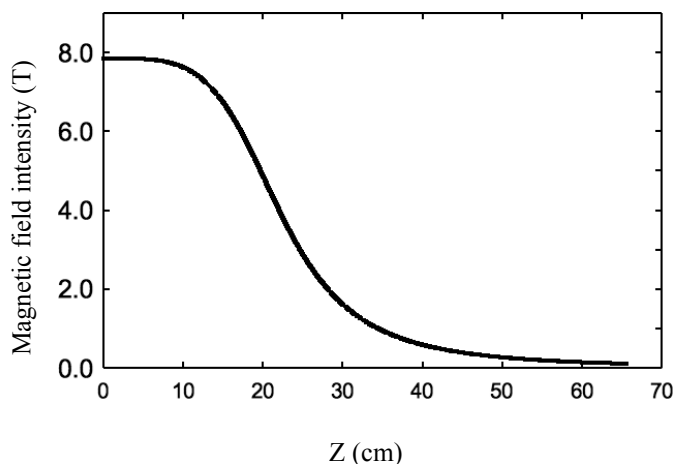


図2-2 Z軸方向の磁場強度

3. 実験方法及び実験結果

今回、動作特性を調べるにあたり、発振出力の磁場強度依存性、発振周波数及び発振出力測定、長時間運転時の発振出力の安定性、及びガウスビームへの変換のために必要である発振モードのパターン測定を行った。以下にはそれぞれの実験結果について記す。

3-1. 発振モードの磁場強度依存性

焦電型検出器を用いて、磁場を掃引したときの発振モードの磁場強度依存性の結果を図3-1に示す。右図は、カソード電圧 -15 kVで 3.0 T から 8.0 Tまで掃引した結果であり、右図は同じ磁場領域においてハイパスフィルター($\phi 0.7$ カットオフ周波数 ~ 251 GHz)を焦電型検出器の前に装着し、基本波による発振をカットして得られた結果である。また、各図の上は発振開始電流の計算結果である。

目的の発振である $TE_{4,2}$ モードの発振が磁場強度 7.45 Tにおいて確認できる。 $TE_{1,3}$ モードの発振も磁場強度 6.7 Tにおいて確認できる。ハイパスフィルターを用いた結果では $TE_{1,6}$ モードの発振を確認することができた。

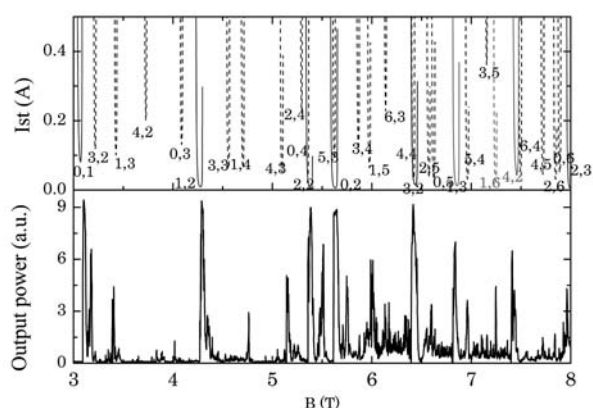


図3-1a 発振モードの磁場強度依存性

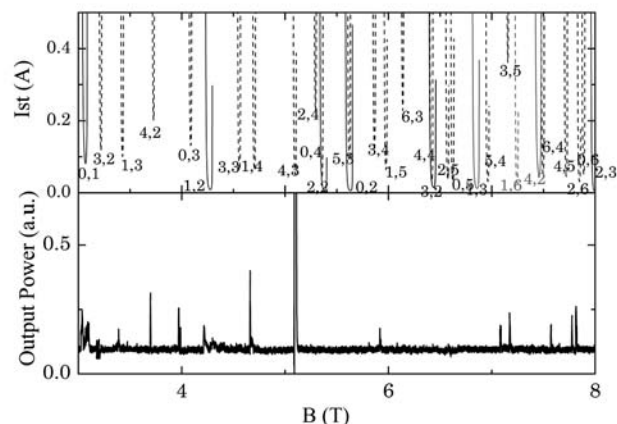


図3-1b 発振モードの磁場強度依存性
(ハイパスフィルターあり)

3-2. 発振周波数及び発振出力測定

発振モードの磁場強度依存性の実験により発振が確認できたモードに対しての発振周波数及び発振出力の測定結果を以下の表1,2にまとめる。ここで ΔR は設計値と周波数測定の結果より演算さえる半径との差を示している。この ΔR を元に測定できていないモードの周波数を計算した値を f_{est} に示す。

表 1 基本波発振

mode	$B_{\text{cal}}(\text{T})$	$B_{\text{meas}}(\text{T})$	$f_{\text{cal}}(\text{GHz})$	$f_{\text{meas}}(\text{GHz})$	$\Delta R(\mu\text{m})$	$f_{\text{est}}(\text{GHz})$	$P(\text{W})$
TE01	3.07	3.04	86.28			86.11	
TE12	4.25	4.23	117.15			116.92	
TE22	5.35	5.32	147.28			146.99	
TE02	5.62	5.55	154.06			153.76	
TE32	6.46	6.35	175.97			175.63	
TE13	6.85	6.83	187.4	187.08	4		213
TE42	7.45	7.42	203.75	203.30	5		138
TE23	8.00	7.89	218.82			218.39	
TE03	8.17	8.06	223.29			222.85	

表 2 二次高調波発振

mode	$B_{\text{cal}}(\text{T})$	$B_{\text{meas}}(\text{T})$	$f_{\text{cal}}(\text{GHz})$	$f_{\text{est}}(\text{GHz})$	$P(\text{W})$
TE06	7.89	7.82	430.38	429.54	
TE26	7.84	7.78	428.12	427.29	
TE45	7.72	7.57	421.17	420.35	
TE16	7.25	7.22	395.28	394.51	27
TE36	7.15	7.06	391.96	391.19	
TE15	5.97	5.91	326.15	325.51	
TE34	5.86	5.82	320.72	320.09	
TE43	5.09	5.00	278.30	277.75	
TE14	4.70	4.66	258.90	258.39	
TE03	4.09	3.97	223.74	223.30	
TE42	3.73	3.70	204.73	204.33	
TE13	3.43	3.39	187.40	187.03	

3-3. 発振出力の長時間安定性

TE_{4,2}モードの発振出力の時間安定の結果を図3-3に示す。実験には、焦電型検出器も用いた。実験結果より、初めの20分間は、大きな出力変動がみられる。これは、ビーム電流量の変化によるものであり、ビーム電流量が落ち着いた20分後は、10%ほどの変動に落ち着いている。これは、フィードバックもなにもかけずに行った結果であるが、DNP-NMR分光実験に用いることのできる範囲内の変動であることが確認できた。

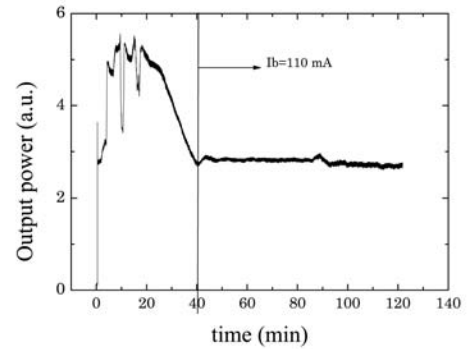


図3-3 TE_{4,2}モード 出力の長時間安定性

3-4. 出力のビーム電流量依存性

各発振モードのビーム電流量に対する出力を、導波管($\phi 28$)で伝送後、水負荷（容量 30 ml）および温度計を用いて水の温度上昇から算出した(図3-4)。■はTE_{1,3}モードの測定結果、▲はTE_{4,2}モードの測定結果、●はTE_{1,6}モードの測定結果をそれぞれ示している。どのモードに対してもビーム電流量が300 mA以下で最高の出力が得られることが分かった。

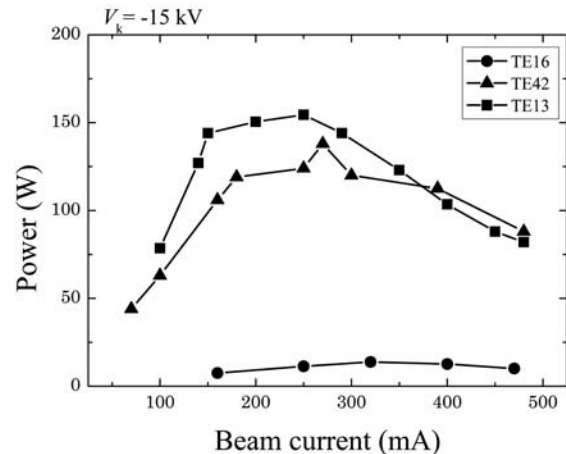


図3-4 出力のビーム電流量依存性

3-5. 発振モードパターン測定

目的のモードに対して、出力窓の上方に塩ビ板を設置し、塩ビ板の上昇温度を赤外線カメラを用いて各モードを測定した結果について下図3-5に示す。図3-5aは、TE_{4,2}モードに対して測定した結果であり、図の下側のグラフは、図中の線に沿った電場分布である。 θ 方向には8山観測することができる。一方半径方向には、一山しか観測できないことから、TE_{4,2}モードからTE_{4,1}モードへの変換が起こったと考えられる。この結果より、共振器部における発振はTE_{4,2}モードの単独発振であると言える。図3-5bは、TE_{1,3}モードに対して測定した結果である。 θ 方向には2山観測することができる。半径方向には、3山観測できることから、共振器部における発振はTE_{1,3}モードの単独発振であると言える。図3-5cは、TE_{1,6}モードに対して測定した結果である。 θ 方向には2山観測することができる。一方半径方向には、3山しか観測できないことから、TE_{1,6}モードからTE_{1,3}モードへの変換が起こったと考えられる。この結果より、共振器部における発振はTE_{1,6}モードの単独発振であると言える。

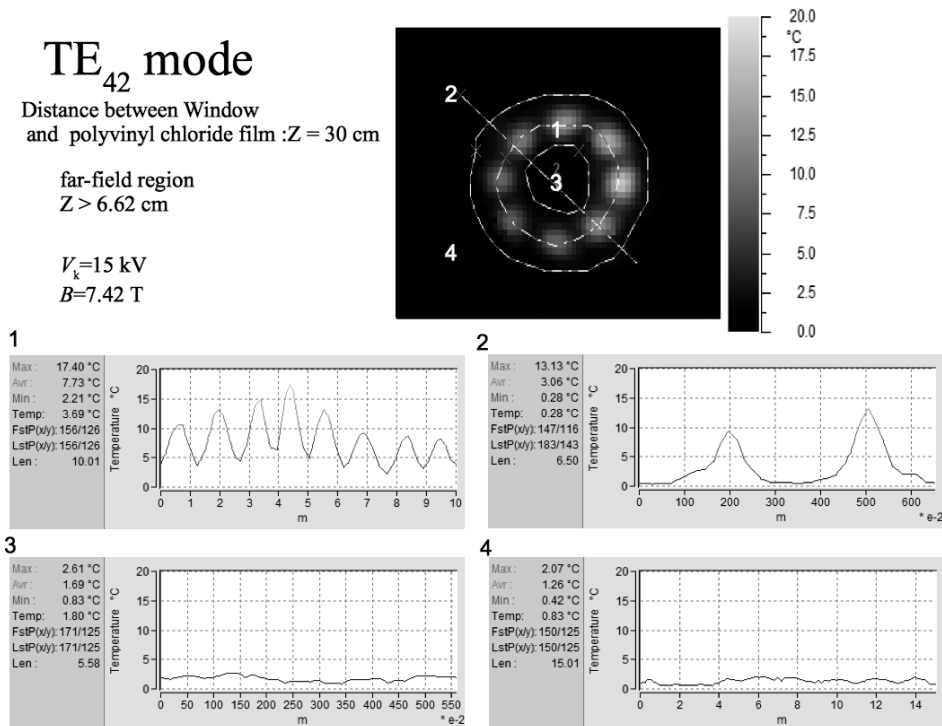


図3-5a TE4,2 mode発振パターン測定 (出力窓からの距離は30 cm)

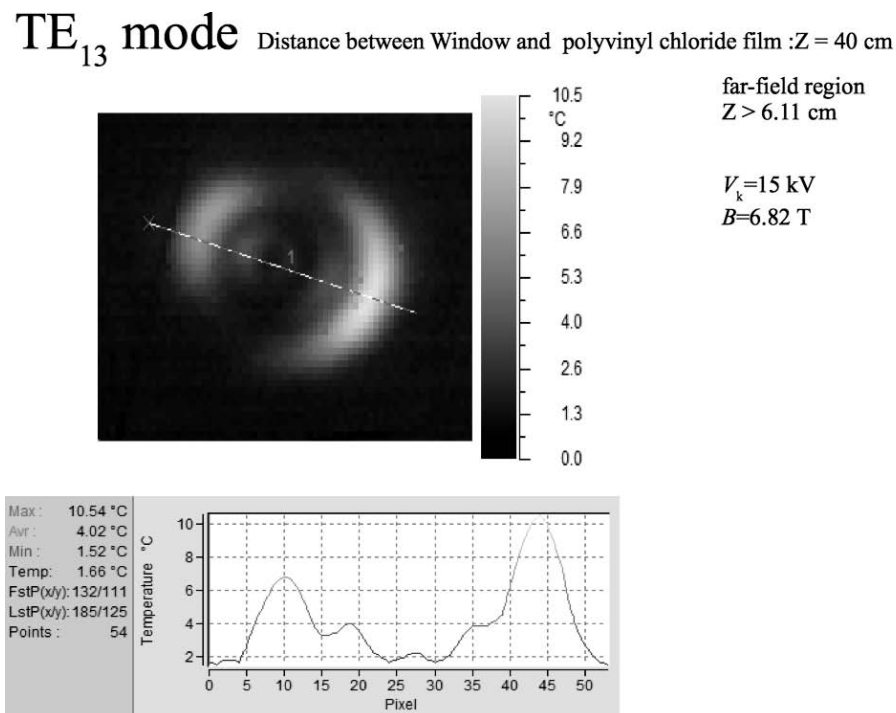


図3-5b TE1,3 mode発振パターン測定 (出力窓からの距離は40 cm)

TE₁₆ mode Distance between Window and polyvinyl chloride film : 20 cm

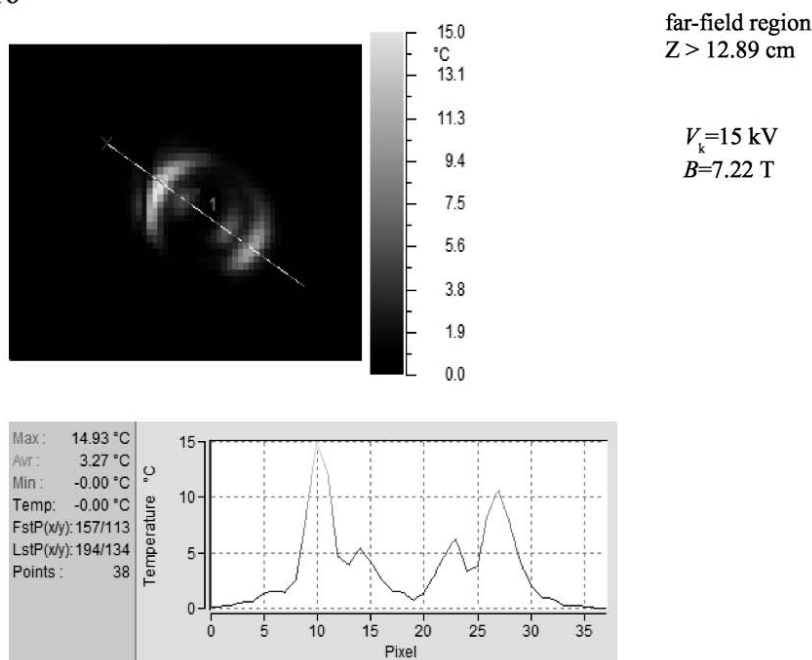


図3-5c TE1,6 mode発振パターン測定 (出力窓からの距離は30 cm)

4. Warwick大学へ装置の移設

300 MHz及び600 MHz DNP-NMR分光測定を行うための光源Gyrotron FU CW VIIを開発し、発振特性を調べた。その結果、DNP-NMR分光測定をするための光源として十分であると判断し、実際に実験を行うWarwick大学に装置の移設を行った。(図4-1) 図中の手前にあるのが移設したGyrotron FU CW VIIであり、奥にある(写真右)がNMR装置である。この一つで300MHzと600MHz-NMR分光の両方の測定が可能である。ジャイロトロンの電源はWarwick大学で製造されたパルス動作も可能な電源である。またデマウントブル管であるため、移設後はコンディショニングが必要であり、短期間での調整は難しい。しかし、動作試験を行ったところ、TE_{4,2}モード、TE_{1,3}モード及びTE_{1,6}モードの発振を確認することができた。発振出力はTE_{4,2}モード 27 W, TE_{1,3}モード 67 W, TE_{1,6}モード 12 Wをそれぞれ確認できた。今後、ジャイロトロンのコンディショニングを更に進めるとともに、ジャイロトンから出力された電磁波をガウスビームに変換後、光学式の伝送系を用いてNMR装置に入射しDNP-NMR分光実験を行う。



図4-1 Gyrotron FU CW VIIの移設 (warwick 大学にて)

5.まとめ

今回，Gyrotron FU CW VIIの動作特性を調べるための実験を行った。以下の通りの結果を得ることができた。

・各モードの周波数及び出力

TE_{4,2}モード（基本波発振）に対して，ヘテロダイン受信系をもちいた周波数測定により203.30 GHz，水負荷を用いた出力測定により138 Wを確認した。同様に，TE_{1,3}モード（基本波発振）は周波数187.08.30 GHz，出力213 Wを確認した。TE_{1,6}モード（二次高調波発振）に対しては周波数測定を行うことができなかったため，基本波発振の周波数測定結果より算出した共振器半径の製作誤差 $\Delta R=4.5\mu\text{m}$ を考慮することで，周波数 394.51 GHzを見積もった。また出力測定により27 Wを得た。

・発振出力の安定性

TE_{4,2}モードについて測定した結果，ビーム電流量により大きく変化するが，電流量が安定数すると10%ほどの変化に押さえながら長時間動作させることができる。

- ・ 発振出力のビーム電流量依存性

DNP-NMR分光実験に用いるモードについて発振出力のビーム電流量依存性しらべた。その結果、どのモードに対しても、電流量が300 mA程度で最も高い出力が得られた。

- ・ モードパターン測定

それぞれの発振が単独発振の確認及びガウスビームへの変換のため、モードパターンを塩ビ板および赤外線カメラを用いて測定した。各モードとも、半径方向の電場分布からダウンモードへの変換が起きていると考えられるが、方位角方向の電場分布より、各モードとも単独発振であると確認できた。

- ・ 装置の移設

以上の結果より、DNP-NMR分光実験に必要な条件を満たすと判断し、NMR分光装置のあるWarwickl大学に移設を行った。移設後の動作試験では各モードの出力を測定し各モードとも10 W以上を確認した。今後、ジャイロトロンのコンディショニングを更に行い、発振モードをガウスビームに変換しNMR分光装置に伝送することで、DNP-NMR分光実験を開始する。

参考文献

- [1] Griffin, et al., 250 GHz CW gyrotron oscillator for dynamic nuclear polarization in biological solid state NMR, Journal of Magnetic Resonance 189, 251-279 (2007)
- [2] T.Fujiwara, et al., Application of High-Field DNP to High-Sensitivity Solid-State NMR for Structural Analysis of Proteins, J.Jpn. Soc. Infrared Science & Technology 16 (2007)
- [3] A.B.Barnes, et al., High-Field Dynamic Nuclear Polarization for Solid and Solution Biological NMR, Appl. Magn. Reson 34, 237-263 (2008)
- [4] T. Idehara, et al., Development of Terahertz FU CW Gyrotron Series for DNP, Appl. Magn. Reson 34, 265-275 (2008)